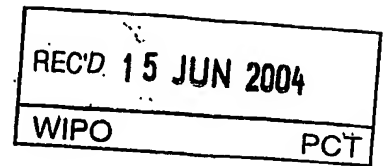


**PRIORITY  
DOCUMENT**  
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)



**Prioritätsbescheinigung über die Einreichung  
einer Patentanmeldung**

**Aktenzeichen:** 103 17 780.9

**Anmeldetag:** 16. April 2003

**Anmelder/Inhaber:** Forschungszentrum Jülich GmbH, 52428 Jülich/DE

**Bezeichnung:** Kathode für eine Direkt-Methanol-Brennstoffzelle  
sowie Verfahren zum Betreiben derselben

**IPC:** H 01 M 4/86

Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ursprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.

München, den 4. Juni 2004  
Deutsches Patent- und Markenamt  
Der Präsident  
Im Auftrag

Wehner



Beschreibung  
Kathode für eine Direkt-Methanol-Brennstoffzelle  
sowie Verfahren zum Betreiben derselben

---

Die Erfindung betrifft eine Kathode für eine Niedertemperatur-Brennstoffzelle, insbesondere für eine Direkt-Methanol-Brennstoffzelle, sowie ein vorteilhaftes Verfahren zum Betreiben derselben.

5 Eine Niedertemperatur-Brennstoffzelle, insbesondere eine Polymer-Elektrolyt-Membran- (PEM-) Brennstoffzelle, besteht aus einer Anode und einer Kathode, die durch eine für Ionen durchlässige Polymer-Membran getrennt  
10 sind. Dieser Elektrolyt ist ca. 0,1 mm dick. Die gasdichte Membran, die für Wasserstoff und Sauerstoff undurchlässig ist, und auch nicht Elektronen leitend ist, ist in der Regel für Protonen durchlässig. Die Katalysatorschicht weist in der Regel Platin oder Platinlegierungen auf, und wird als dünne, katalytisch wirkende  
15 Schicht auf der Membran angeordnet. Die Elektroden weisen eine hohe Porosität und damit eine große Oberfläche auf, die vorteilhaft für die elektrochemischen Umsetzungen zur Verfügung steht. Die elektronisch leitende Diffusionsschicht der Elektroden ist mit den Stromabnehmern verbunden und grenzt direkt an die Katalysatorschicht an. Über die sogenannten bipolaren Platten werden einerseits die Einzelzellen getrennt und andererseits die Betriebsmittel, Brennstoff und Oxidationsmittel,  
20 zugeführt. Mit Hilfe geeigneter Verteilerstrukturen werden die Betriebsmittel regelmäßig homogen an die Elektroden heran geführt.

25

Der der Anode zugeführte Wasserstoff setzt sich mit Hilfe des Katalysators elektrochemisch um. Die dabei frei werdenden Elektronen gelangen über Stromabnehmer in den äußeren Stromkreislauf, während die Protonen durch die Elektrolytmembran zur Kathode diffundieren. Die negativ geladenen Elektrolytionen leiten das Proton weiter, wobei die Ionen selber ortsfest bleiben. An der Katalysatorschicht der Kathode rekombinieren die Sauerstoffionen aus der Luft, die Elektronen aus dem Stromkreislauf sowie die Protonen aus der Membran und erzeugen unter Wärmeentwicklung Wasser. Die Membran auf der Anodenseite ist regelmäßig feucht zu halten, während auf der Kathodenseite das Produktwasser regelmäßig entfernt werden muss.

Bei den aus dem Stand der Technik bekannten Niedertemperatur-Brennstoffzellen tritt häufig das Problem auf, dass die Diffusionsschicht der Kathode durch permeiertes oder an der Kathode erzeugtes Wasser derart gefüllt ist (Flooding), dass ein reibungsloser Sauerstofftransport bis an die Katalysatorschicht der Kathode nicht mehr gegeben ist. Als Folge daraus werden diese Brennstoffzellen regelmäßig mit einem hohen Überschuss an Sauerstoff gefahren, um die vorgenannten Transporthemmungen für den Sauerstoff zu verringern.

#### Aufgabe und Lösung

Die Aufgabe der Erfindung ist es, eine Brennstoffzelle zu schaffen, bei der die vorgenannte Massentransporthemmung und das Zulaufen der Kathode mit permeiertem und produziertem Wasser (Flooding) regelmäßig verhin-

dert werden kann.

Die Aufgabe der Erfindung wird gelöst durch eine Brennstoffzelle, mit der Gesamtheit an Merkmalen gemäß Hauptanspruch, sowie durch ein Verfahren zum Betreiben dieser Brennstoffzelle gemäß Nebenanspruch. Vorteilhafte Ausgestaltungen der Brennstoffzelle und des Verfahrens finden sich in den jeweils darauf rückbezogenen Ansprüchen.

#### Gegenstand der Erfindung

Die der Erfindung zugrunde liegende Idee basiert darauf, den an der Kathode notwendigen Sauerstoff nicht erst durch die poröse Schicht (Diffusionsschicht) der Kathode bis zur Katalysatorschicht zu führen, da sich diese regelmäßig mit Wasser zusetzt und eine Massentransporthemmung verursacht.

Zur Lösung des Problems weist daher die erfindungsgemäße Brennstoffzelle eine Kathode auf, umfassend eine Diffusionsschicht mit einer darauf angeordneten Katalysatorschicht, bei der die Diffusionsschicht direkt an die Ionen leitende Elektrolyt-Membran angrenzt und die dem freien Kathodenraum zugewandte Seite der Katalysatorschicht direkt Sauerstoff zugeführt werden kann.

Im Prinzip handelt es sich dabei um ein Vertauschen der bislang üblichen Anordnung der Schichten einer Kathode innerhalb einer Brennstoffzelle. Da bei der erfindungsgemäßen Kathode in der Diffusionsschicht neben dem Elektronentransport nun auch ein Ionentransport statt-

findet, weist die Diffusionsschicht ein Ionen leitendes Material auf. Insbesondere weist sie einen hohen Anteil an einer Ionomerphase auf.

5 Bei der erfindungsgemäßen Kathode kann nur vorteilhaft der gasförmige Sauerstoff, gegebenenfalls über eine Verteilerstruktur, direkt bis an die Katalysatorschicht geführt werden. Die Protonen wandern von der Anode durch die Elektrolyt-Membran und weiter durch die so-  
10 wohl Elektronen als auch Ionen leitende Diffusions- schicht der Kathode bis zur Katalysatorschicht, wo die elektrochemische Umsetzung erfolgt. Die Elektronen werden über den Stromleiter ebenfalls durch die Elektronen leitende Diffusionsschicht der Kathode bis zur Katalysatorschicht transportiert. Die mit Wasser gefüllte  
15 Diffusionsschicht (Flooding) bedeutet nun vorteilhaft keine Transporthemmung mehr für den Sauerstoff. Gleichzeitig kann das Wasser, welches an der Katalysatorschicht erzeugt wird, leicht in den freien Kathodenraum abgeleitet werden und muss nicht mehr, wie beim Stand  
20 der Technik vorgesehen, zunächst durch die Diffusionsschicht wandern.

Die erfindungsgemäße Brennstoffzelle bzw. das Verfahren zum Betreiben einer solchen weisen die folgenden Vorteile gegenüber dem Stand der Technik auf:

- Die Katalysatorschicht kann auf einfache Weise ohne weitere Stofftransporthemmungen mit Sauerstoff versorgt werden.
- Das an der Katalysatorschicht gebildete Wasser kann zusammen mit dem permeierten Wasser leichter aus dem Kathodenraum ausgetragen werden, da es direkt in den

freien Kathodenraum abfließen kann und nicht erst durch ein poröses Material wandern muss.

5 Spezieller Beschreibungsteil

Nachfolgend wird der Gegenstand der Erfindung anhand von zwei Figuren und einem Ausführungsbeispiel näher erläutert, ohne dass der Gegenstand der Erfindung dadurch beschränkt wird.

10

Legende zu den Figuren:

- 1 Ionen leitende Elektrolytmembran
- 2 Anode:
  - 15 2a elektrisch leitende Diffusionsschicht
  - 2b Katalysatorschicht
  - 2c freier Anodenraum, ggfs. mit Verteilerstruktur
- 3 Kathode:
  - 20 3a elektrisch leitende Diffusionsschicht
  - 3b Katalysatorschicht
  - 3c freier Kathodenraum, ggfs. mit Verteilerstruktur
- 4 Stromabnehmer

25

30

Figur 1 zeigt den schematischen Aufbau einer Brennstoffzelle gemäß dem Stand der Technik, bei dem die Katalysatorschicht der Kathode direkt an die Elektrolytmembran grenzt.

Demgegenüber zeigt die Figur 2 eine erfindungsgemäße Ausführungsform einer Brennstoffzelle mit einer Kathode 3, dessen Diffusionsschicht 3a direkt an die Elektrolyt-Membran 1 angrenzt und die Katalysatorschicht 3b zum freien Kathodenraum 3c weist.

5

## Patentansprüche

---

- 5
1. Niedertemperatur-Brennstoffzelle mit einer Anode, einer Kathode sowie einer dazwischen angeordneten Elektrolytmembran, wobei die Kathode eine Diffusionsschicht und eine darauf angeordnete Katalysatorschicht aufweist, dadurch gekennzeichnet, dass die Diffusionsschicht der Kathode direkt an die Elektrolyt-Membran angrenzt.
- 10
2. Niedertemperatur-Brennstoffzelle nach Anspruch 1, bei der die Katalysatorschicht der Kathode direkt an den freien Kathodenraum angrenzt.
- 15
3. Niedertemperatur-Brennstoffzelle nach Anspruch 1 bis 2, bei der die Diffusionsschicht der Kathode Ionen leitendes, insbesondere Protonen leitendes Material aufweist.
- 20
4. Verfahren zum Betreiben einer Niedertemperatur-Brennstoffzelle mit einer Anode, einer Kathode sowie einer dazwischen angeordneten Elektrolytmembran, wobei die Kathode eine Diffusionsschicht und eine darauf angeordnete Katalysatorschicht umfasst, mit den Schritten
- 25
- die auf der Anodenseite erzeugten Protonen wandern durch die Elektrolytmembran und durch die Diffusionsschicht der Kathode bis zur Katalysatorschicht,
- 30
- Sauerstoff wird über den freien Kathodenraum direkt bis an die Katalysatorschicht geführt.



5. Verfahren nach Anspruch 4, bei dem als Brennstoff Methanol oder eine Methanol-Wassermischung eingesetzt wird.

5

6. Verfahren nach einem der Ansprüche 4 bis 5, bei dem der Sauerstoff als reiner Sauerstoff oder als Luft-sauerstoff zugeführt wird.

10

7. Verfahren nach einem der Ansprüche 4 bis 6, bei dem das an der Katalysatorschicht der Kathode erzeugte Wasser direkt in den freien Kathodenraum abgeführt wird.

## Z u s a m m e n f a s s u n g

### Kathode für eine Direkt-Methanol-Brennstoffzelle sowie Verfahren zum Betreiben derselben

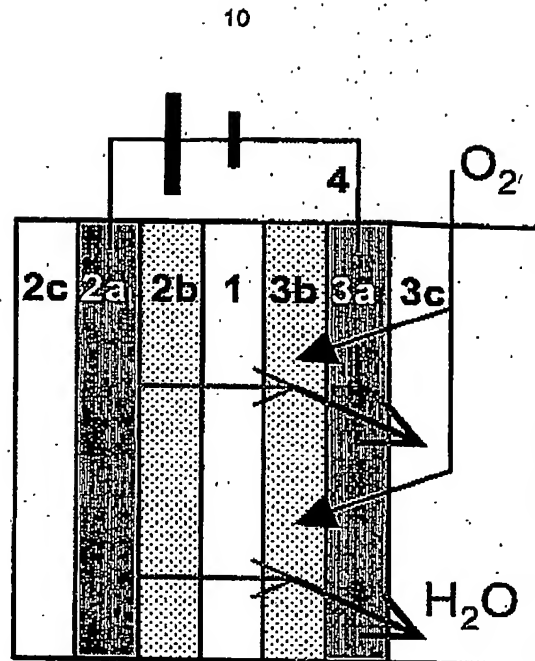
---

Bei den aus dem Stand der Technik bekannten Niedertem-  
peratur-Brennstoffzellen tritt häufig das Problem auf,  
dass die Diffusionsschicht der Kathode durch permeier-  
tes oder an der Kathode erzeugtes Wasser derart gefüllt  
ist, dass ein reibungsloser Sauerstofftransport bis an  
die Katalysatorschicht der Kathode nicht mehr gegeben  
ist. Als Folge daraus werden diese Brennstoffzellen re-  
gelmäßig mit einem hohen Überschuss an Sauerstoff ge-  
fahren, um die vorgenannten Transporthemmungen für den  
Sauerstoff zu verringern.

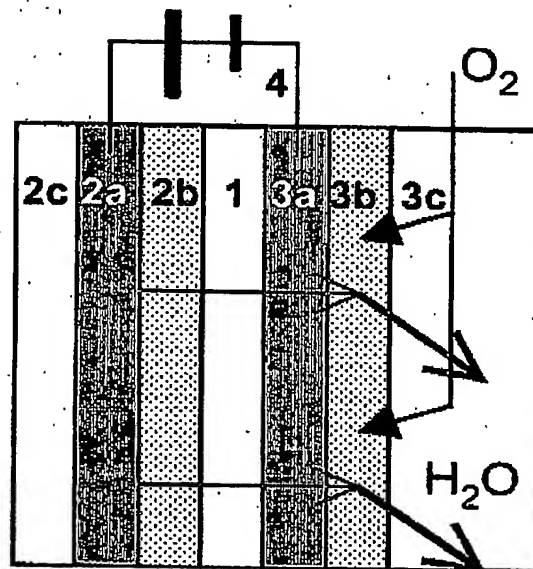
Die erfindungsgemäße Brennstoffzelle löst dieses Prob-  
lem, indem sie die Diffusionsschicht und die Katalysa-  
torschicht der Kathode in ihrer Anordnung vertauscht.  
Dabei grenzt die Diffusionsschicht, die nun auch Ionen  
leitend ausgeführt ist, direkt an die Elektrolytmembran  
an. Die auf den freien Kathodenraum ausgerichtete Kata-  
lytorschicht kann so vorteilhaft direkt mit dem zuge-  
führten Sauerstoff ohne weitere Transporthemmungen rea-  
gieren.

Als weiterer Vorteil lässt sich das an der Katalysator-  
schicht der Kathode erzeugte und/oder durch die Elekt-  
rolyt-Membran und die Diffusionsschicht permeierte Was-  
ser leicht über den freien Kathodenraum abführen.

11



Figur 1



Figur 2

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**